

BEST AVAILABLE COPY
PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-110072

(43)Date of publication of application : 28.04.1998

(51)Int.Cl.

C08L 23/22
C03C 27/10
C08L 23/02
C09J123/22
C09K 3/10

(21)Application number : 08-309535

(22)Date of filing : 20.11.1996

(71)Applicant : ASAHI GLASS CO LTD.

(72)Inventor : SHIBUYA TAKASHI
NAKAGAWA HIDEKI
KODERA SHOGO
MATSUYAMA YOSHITAKA

(30)Priority

Priority number : 07339629
08214865

Priority date : 26.12.1995
14.08.1996

Priority country : JP
JP

(54) SEALANT COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a sealant compsn. which has a high hardness while retaining the characteristics of butyl rubber and which can give a double glazing by a primary sealing alone by compounding butyl rubber with a crystalline polyolefin.

SOLUTION: This compsn. is prepd. by compounding 50-98wt.% butyl rubber with 2-50wt.% crystalline polyolefin. Pref. the compsn. further contains a filler in an amt. of up to 200 pts.wt. based on 100 pts.wt. the sum of the rubber and the polyolefin. Pref. the rubber has a relatively high-mol.-wt. and is an isobutylene homopolymer, an isobutylene-isoprene copolymer, or a partially vulcanized butyl rubber. Pref. the polyolefin is an ethylene or propylene homopolymer or an ethylene-propylene copolymer and has a crystallinity of 50% or higher. Further addition of additives, esp. zeolite as a drying agent, is pref. This compsn. is esp. suitable for sealing the edges of a double glazing.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

*** NOTICES ***

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The sealing agent constituent with which the rate of butyl system rubber and butyl system rubber [as opposed to both total quantity including crystalline polyolefine] is characterized by the rate of crystalline polyolefine being 2 - 50 % of the weight 50 to 98% of the weight.

[Claim 2] The sealing agent constituent characterized by for the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine being [for the rate of butyl system rubber and the butyl system rubber to the total quantity of crystalline polyolefine] 2 - 50 % of the weight, and the rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine being below the 200 weight sections including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler.

[Claim 3] The sealing agent constituent of claims 1 or 2 with which crystalline polyolefine consists of one or more sorts of polymers chosen from polyethylene, polypropylene, or those denaturation objects.

[Claim 4] The sealing agent constituent of claims 1, 2, or 3 for the edge seals of multiple glass.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIPi are **not** responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]**[0001]**

[Field of the Invention] Especially this invention relates to the sealing agent constituent suitable for the edge seals of multiple glass.

[0002]

[Description of the Prior Art] Butyl system rubber is used as sealing agents, such as a building-materials application, from the field of the adhesiveness, high weatherability, and low moisture permeability. However, depending on a use application, since a degree of hardness is low and there is cold flow nature, if independent in respect of endurance over a long period of time, there is a problem. Moreover, since melt viscosity is high, the problem of being bad also has workability. In order to raise a degree of hardness, there is also the approach of mixing various fillers, but if only addition of a filler performs high degree-of-hardness-ization, since tensile strength and tear reinforcement fall depending on the case in addition to melt viscosity going up and spoiling workability remarkably, it is not desirable.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] When butyl system rubber is used as an edge sealant of multiple glass, metal spacers, such as a product made from aluminum, are usually used from the degree of hardness of butyl system rubber being low, and butyl system rubber is arranged as a sealant between a spacer and glass. Butyl system rubber carries out the seal of the field between a glass plate and a spacer, and has the function to maintain airtightness. However, the production process of the need [of using a metal spacer] top multiple glass is complicated, and development of the sealing agent which can simplify a production process more is desired.

[0004] Many of present multiple glass like the multiple glass 1 shown in drawing 3 Glass plate of at least two sheets 1a, By making 1b counter through the metal spacer 2, and making the one-stage-sealing material 3 which consists of butyl system rubber the hollow layer formed of it between glass plates 1a and 1b and the metal spacer 2 containing a desiccating agent intervene After intercepting from the open air, it is manufactured by the approach of sealing the opening (crevice) which consisted of the insides and spacer peripheral faces of the periphery section of those glass plates that have countered in the two-stage-sealing material 5 which consists of a room-temperature-setting mold sealing agent represented with a polysulfide system or a silicone system.

[0005] The spacer made from aluminum was bent about simplification or automation of the production process of multiple glass, it is made a method, and productivity amelioration of making the method of application automate etc., as a result a cost cut, etc. have so far been considered and proposed also about the room-temperature-setting mold sealing agent. Moreover, the approach using the resin which scoured the drying agent instead of the spacer made from aluminum as shown in drawing 4 as a spacer 4 has also been proposed.

[0006] However, in the multiple glass using such a room-temperature-setting mold sealing agent, the class of spacer used is not asked, but care of health of long duration is needed after multiple glass manufacture for hardening of a sealing agent, and care-of-health termination cannot ship a product. Therefore, the care-of-health tooth space was provided in works, after keeping a

certain fixed period product, it had to ship, and time for delivery delayed, and the request of a user was not necessarily able to be met. Moreover, in order to correspond to the need which will increase in the future, to avoid this since the care-of-health tooth space more than the former is needed and to secure the amount of supply of sufficient multiple glass, compaction of the above-mentioned care-of-health time amount is considered to be the need.

[0007] From the point of low-cost-izing of multiple glass, the method of manufacturing multiple glass, without using two-stage-sealing material is proposed, using as a spacer the moldings which consists of resin which scoured the drying agent (JP,61-20501,B). However, maintenance of the configuration as multiple glass was [the spacer independent which degrees of hardness run short as a spacer, and consists of the above-mentioned resin in fact] difficult for this resin for spacers.

[0008] Moreover, JIS which scoured the drying agent to thermoplastics, such as the rigid resin in which extrusion molding is possible, for example, vinyl chloride resin etc., Multiple glass using the ingredient which has the hardness of the A degree of hardness (HsA) 95 as a spacer is known (JP,7-17748,A). However, when the ingredient which has this hardness of HsA95 is used as the spacer or sealant of multiple glass, the stress concerning the seal section or the glass plate of multiple glass is large, and there are difficulties, like the glass crack of exfoliation of the seal section or multiple glass itself arises.

[0009] The multiple glass which is satisfied only with the spacer demanded as multiple glass of all properties, such as a life, configuration maintenance nature, and a moldability, is not known for the present condition, without using two stage sealing. The purpose of this invention is especially as a sealant which does not need such two-stage-sealing material substantially in multiple glass to offer the sealing agent constituent which is a useful ingredient.

[0010]

[Means for Solving the Problem] this invention person found out that this purpose could be attained by blending crystalline polyolefine, as a result of examining wholeheartedly how to realize high degree-of-hardness-ization of butyl system rubber by the simplest possible approach, maintaining the property of butyl system rubber, such as elevated-temperature adhesiveness, weatherability, and low moisture permeability. This invention is the following sealing agent constituent containing butyl system rubber and crystalline polyolefine.

[0011] The sealing agent constituent with which the rate of butyl system rubber and butyl system rubber [as opposed to both total quantity including crystalline polyolefine] is characterized by the rate of crystalline polyolefine being 2 - 50 % of the weight 50 to 98% of the weight.

[0012] The sealing agent constituent characterized by for the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine being [for the rate of butyl system rubber and the butyl system rubber to the total quantity of crystalline polyolefine] 2 - 50 % of the weight, and the rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine being below the 200 weight sections including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler.

[0013]

[Embodiment of the Invention] The butyl system rubber in this invention means the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of an isobutylene. as a homopolymer -- comparatively -- the homopolymer of the amount of macromolecules -- there is a homopolymer of low molecular weight comparatively. The former molecular weight is 30,000 or more, and typical things (commercial item etc.) are usually 50,000-150,000. The latter molecular weight is less than 30,000, and typical things (commercial item etc.) are usually 10,000 - 15,000. In addition, the molecular weight in here means viscosity average molecular weight (SUTAU DIN gar molecular weight). When using the homopolymer of an isobutylene as butyl system rubber in this invention, the homopolymer of the amount of macromolecules is used comparatively. Comparatively, the homopolymer of low molecular weight can be used, using it together with other butyl system rubber, and is usually used as an additive for the purpose of adhesion grant or plasticization (hypoviscosity-izing). In addition, the polyisobutylene in an example says these isobutylene homopolymers.

[0014] A copolymer is a polymer obtained by copolymerizing one or more sorts of an isobutylene and a comparatively little copolymeric monomer, and has an isoprene, 1-butene, a divinylbenzene, p-methyl styrene, etc. as a copolymeric monomer, for example. The copolymer (what is usually called isobutylene isoprene rubber) obtained by copolymerizing with an isoprene especially as a copolymer is desirable. There is partial vulcanization isobutylene isoprene rubber, obtained by carrying out partial vulcanization of halogenation isobutylene isoprene rubber, isobutylene isoprene rubber, etc. of isobutylene isoprene rubber, such as a chlorination object and a bromination object, as a denaturation object. In this invention, especially desirable butyl system rubber is the isobutylene homopolymer, the copolymer of the isobutylene and isoprene which are usually called isobutylene isoprene rubber, and partial vulcanization isobutylene isoprene rubber of the amount of giant molecules comparatively.

[0015] The crystalline polyolefine in this invention is the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of olefins, such as ethylene and a propylene, and says what has crystallinity. Other structures may be included although it is desirable that they are syndiotactic structure and isotactic structure as for the structure of a polymer. Especially as an olefin, ethylene and a propylene are desirable.

[0016] As a copolymer, there are a copolymer of two or more sorts of olefins and a copolymer of an olefin and other monomers, and the copolymer of ethylene, a propylene, and other monomers that do not check crystallinity is suitable. Moreover, as a copolymer, a block copolymer is more suitable than an alternating copolymer and a random copolymer. There is crystalline polyolefine which introduced functional groups, such as an acid-anhydride radical, a carboxyl group, and an epoxy group, as a denaturation object.

[0017] In this invention, especially desirable crystalline polyolefine is the polyethylene and polypropylene which are a substantial homopolymer. For example, low density polyethylene, medium density polyethylene, high density polyethylene, etc. can be used as polyethylene. 30% or more of the degree of crystallinity of crystalline polyolefine is desirable, and is desirable.

[especially 50% or more of] For example, the value of the typical crystallinity in the usual crystalline polyolefine is 55 - 65% with polypropylene 75 to 90% in high density polyethylene 50 to 60% at low density polyethylene. Although especially molecular weight is not limited, with polyethylene, the thing of about 100,000-400,000 is suitable in about 200,000-800,000 and polypropylene at number average molecular weight.

[0018] Thus, since polyethylene and polypropylene have high crystallinity, from butyl system rubber, it is low moisture permeability, and as compared with a butyl system rubber independent case, the melt viscosity of a constituent falls and fabrication nature of what shows melt viscosity lower especially improves. Therefore, it becomes possible again to blend various inorganic fillers, and the sealing agent of a high degree of hardness is realized, and these are desirable also especially from a viewpoint of economical efficiency.

[0019] In the sealing agent constituent of this invention, the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and is 5 - 40 % of the weight preferably. The rate of crystalline polyolefine is difficult for a raise in the degree of hardness of butyl system rubber at less than 2 % of the weight, the property of crystalline polyolefine serves as a subject by ** 50% of the weight, and it is hard coming to be discovered of the property of butyl system rubber.

[0020] When an inorganic filler is blended, there are few rates of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, and they end. For example, when the inorganic filler more than the about 50 weight section is blended with butyl system rubber to a total of 100 weight sections of crystalline polyolefine, as for the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, the target effectiveness is enough demonstrated at 2 - 20 % of the weight.

[0021] The inorganic filler of an effective dose can be substantially blended with the sealing agent constituent of this invention containing butyl system rubber and crystalline polyolefine. An effective dose means more than 1 weight section to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine substantially. Since the melt viscosity of a constituent goes up and, as for blending too much a lot of inorganic fillers, tensile strength and tear

reinforcement fall, the upper limits of loadings are the 200 weight sections, and are the 150 weight sections preferably. The minimums with the desirable loadings in inorganic filler combination are 10 weight sections.

[0022] As an inorganic filler, it is independent, or they can use what is usually used as an inorganic filler for a calcium carbonate, talc, a mica, two or more sorts of carbon black, etc., using together.

[0023] Before the sealing agent constituent of this invention is used for an application final at least, it is very effective that the butyl system rubber contained in it, and crystalline polyolefine are mixed under an elevated temperature. The elevated temperature in this mixing means the temperature beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine. This mixed temperature needs to be below the decomposition point of butyl system rubber, and is desirable. [of about 300 degrees C or less which is the decomposition point of usual butyl system rubber] 200 degrees C or less are especially desirable from fields, such as productivity. Therefore, the crystalline melting point of crystalline polyolefine also has desirable 200 degrees C or less again.

[0024] As for a sealing agent, in the operating temperature limits, it is more desirable that there is as much as possible little degree-of-hardness change. In order to satisfy such requirements, as crystalline polyolefine, what has a crystalline melting point beyond anticipated-use upper limit temperature is desirable. The anticipated-use upper limit temperature of a sealing agent is about 80 degrees C.

[0025] Since crystalline polyolefine is restrained by the cohesive force by the crystal phase in this invention, the rapid degree-of-hardness fall or flow condition which are looked at by the non-crystalline polymer also in the temperature field beyond glass transition temperature do not happen below by the crystalline melting point. On the contrary, the remarkable fall of melt viscosity is seen bordering on a crystalline melting point, and the effectiveness of making kneading nature with butyl system rubber becoming good can be expected.

[0026] The additive in which it is generally blended with a sealing agent and deals can be blended with the sealing agent constituent of this invention. As such an additive, there are fillers other than hydrolysis nature silyl radical content compounds, such as a drying agent, lubricant, a pigment, an antistatic agent, a tackifier, a plasticizer, an antioxidant, a thermostabilizer, an antioxidant, and a silane coupling agent, a foaming agent, and said inorganic filler etc., for example. Combination of drying agents, such as a zeolite, silica gel, and an alumina, a tackifier, a plasticizer, a silane coupling agent, and various stabilizers is especially desirable.

[0027] Also among additives, it is desirable to blend especially drying agents, such as a zeolite, five to 30% of the weight into a sealing agent constituent. Moreover, the thing which were described above as an additive which gives the adhesion grant effectiveness and the plasticization effectiveness and which is especially done below the 200 weight sections to the butyl system rubber 100 weight section for the 5-150 weight section addition of the polyisobutylene of low molecular weight is also comparatively desirable.

[0028] As for the sealing agent constituent of this invention, it is desirable to mix butyl system rubber and crystalline polyolefine at the temperature below the decomposition point of butyl system rubber beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine at least as mentioned above, and to be manufactured. Especially this mixed temperature has desirable 120-250 degree-C** 100-280 degrees C. You may mix to coincidence and other compounds and additives may be mixed before the mixing or to the back. The constituent of this invention is a thermoplastic constituent substantially, and can be mixed with mixers, such as the usual melting mixing extruder and a kneader.

[0029] From it being a thermoplastic constituent substantially, the constituent of this invention can also be continuously fabricated with the above-mentioned mixed actuation as mentioned above. Moreover, a constituent can be manufactured, it can consider as molding materials, such as a pellet type, and the postforming can also be performed. As a fabricating method, the melting fabricating methods, such as an extrusion-molding method and an injection-molding method, can be used. Moreover, it arranges at the edge of the multiple glass ingredient with which opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was continuously carried out in the moldings with shaping actuation, and multiple glass can be manufactured. In this case, by using

the hot constituent which came out of the making machine, a high adhesive property with a glass plate is acquired. Moreover, it is also applicable to a multiple glass ingredient, controlling the temperature fall of a constituent using equipments, such as an applicator. What can be heated as this equipment is desirable.

[0030] As physical properties of the sealing agent constituent of this invention used for the final sealing application, it is JIS. It is desirable that the steam transmission coefficient by K7149 is below 7.0×10^{-8} [cm³ and cm/(cm² and sec-cmHg)] especially below 4.0×10^{-7} [cm³ and cm/(cm² and sec-cmHg)]. Moreover, JIS in 25 degrees C As for especially A degree of hardness (HsA), it is [five or more] more desirable than the field of the configuration maintenance nature of multiple glass that it is 20 or more. Moreover, since not much too hard some have a possibility that the stress concerning the seal section and the glass plate of multiple glass may become large, as for the upper limit of a degree of hardness, about 90 are desirable.

[0031] Especially the sealing agent constituent of this invention is excellent especially as a thing for carrying out the seal of the edge of multiple glass. It is desirable that it is multiple glass of the structure of holding between glass plates with the hardness of a sealant as mentioned above, not using hard spacers, such as metal, as this multiple glass. From the loadings of crystalline polyolefine or an inorganic filler being changed and it being able to make with the sealant of suitable hardness, the sealing agent constituent of this invention is suitable as a sealing agent constituent for the multiple glass of the structure where this spacer is not used. JIS in 25 degrees C of the sealing agent constituent of this invention used for this application As for A degree of hardness (HsA), it is desirable that it is especially 40-90.

[0032] Drawing 1 is the configuration sectional view showing one example of the multiple glass of the above-mentioned structure, and multiple glass 1 is held by only the sealant 2 which consists the glass plates 1a and 1b of two sheets of a sealing agent constituent of this invention at predetermined interval. In addition, it points out that the above semantics of "being based only on a sealant 2" otherwise makes unnecessary the spacer made from a two-stage-sealing material metallurgy group etc., and priming applied if needed is not excepted.

[0033] The above-mentioned multiple glass applies the adhesives which dissolved in the solvent to the glass side where a spacer contacts if needed, and is air-dried. As shown in drawing 2, it is predetermined spacing (for example, 6mm) about the glass plates 1a and 1b of two sheets. It holds to 12mm, next melting of the sealing agent constituent of said this invention is carried out at the temperature of 150-200 degrees C using an extrusion-molding machine, and it is formed by making it intervene between the glass plates of two sheets, and cooling, extruding from a die with a suitable tip configuration. The approach of this double stratification is an example, and the manufacture approach of multiple glass itself is not limited to the above-mentioned approach, for example, it fabricates the sealant of a request configuration beforehand from said sealing agent constituent, with the glass plate of two sheets, it may carry out thermocompression bonding of this, and may form it.

[0034] Like heat reflective glass and low reflection factor glass, the glass plates used for the configuration of multiple glass are glass plates, such as an aperture currently used widely and a door, tempered glass, a glass laminate, metal wired glass, heat absorbing glass, the glass plate that coated the inside with a metal or other inorganic substances thinly, the acrylic resin plate called organic glass, a polycarbonate plate, etc., and are not usually further limited especially to building materials, a car, etc.

[0035] Moreover, multiple glass may consist of glass plates of two sheets, and may consist of three sheets or a glass plate beyond it.

[0036] The sealing agent constituent of this invention is not limited to the sealing agent for the multiple glass of the structure shown in above-mentioned drawing 1. For example, in the multiple glass of the structure which carried out the seal of the edge combining the spacer and sealant of an ingredient (for example, metal and the product made of hard synthetic resin) harder than a sealant, the sealing agent constituent of this invention can be used as an ingredient of a sealant. Moreover, the sealing agent constituent of this invention can be used as sealing agents, such as building-materials applications other than multiple glass.

[0037]

[Example] Next, although an example is given and this invention is explained still more concretely, this invention is not limited to these. The following examples 1-6 and Example 12 are examples, and Examples 7-11 are examples of a comparison.

[0038] [Example 1] It is Mooney viscosity 47 as butyl system rubber. The high density polyethylene (HDPE) which is a melt index 20, 130 degrees C of crystalline melting points, and about 80% of crystallinity as crystalline polyolefine was used using the isobutylene isoprene rubber which is ML(1+8) 100degree C.

[0039] Melting mixing was performed for isobutylene isoprene rubber, and HDPE for 30 minutes by 160 degrees C and 20rpm using the lab PURASUTO mill. About a degree of hardness (HsA), it is JIS. It measured according to K6301. Melt viscosity measured by the KYAPI log rough at 160 degrees C, and showed the value of shear-rate 91sec⁻¹. About the steam transmission coefficient, the water vapor pressure of 20mmHg extent was poured on one side of a thin film at 60 degrees C, another side was made into the vacuum, and it asked from the rate of the steam which penetrates a thin film. About the adhesiveness (elevated-temperature tuck) in 160 degrees C, the case where required enough tucks were discovered was made into O, the case where a tuck was inadequate was made into x, and the case of the middle was made into **.

[0040] It evaluated using an above-mentioned ingredient and an above-mentioned approach about the constituent which consists of 70 % of the weight of isobutylene isoprene rubber, and 30 % of the weight of HDPE(s). A result is shown in Table 1. In addition, in Table 1, 2, and 3, the numeric value of a presentation of an ingredient expresses weight %, and melt viscosity is 104. Making a poise into a unit, a steam transmission coefficient makes a unit 10-9cm³ and cm/(cm² and sec-cmHg).

[0041] [Example 2] It was similarly estimated as Example 1 using the same ingredient and same approach as Example 1 about the constituent which consists of 80 % of the weight of isobutylene isoprene rubber, and 20 % of the weight of HDPE(s). A result is shown in Table 1.

[0042] [Example 3] It examined by the same approach as Example 1 further using the same isobutylene isoprene rubber and same HDPE as Example 1, using talc and HAF mold carbon black as an inorganic filler. The evaluation result about the constituent which consists of 47.5 % of the weight of isobutylene isoprene rubber, 2.5 % of the weight of HDPE(s), 30 % of the weight of talc, and 20 % of the weight of carbon black is shown in Table 2.

[0043] [Example 4] The result similarly estimated as Example 3 is shown in Table 2 about the constituent which consists of 45 % of the weight of isobutylene isoprene rubber and 5 % of the weight of HDPE(s) using the same ingredient as Example 3, 30 % of the weight of talc, and 20 % of the weight of carbon black.

[0044] [Example 5] It is Mooney viscosity 45 as butyl system rubber. The result similarly estimated as Example 1 is shown in Table 3 using the HDPE same as crystalline polyolefine as Example 1 using the partial bridge formation isobutylene isoprene rubber which is ML(1+3) 121degree C about the constituent which consists of 80 % of the weight of partial bridge formation isobutylene isoprene rubber, and 20 % of the weight of HDPE(s).

[0045] [Example 6] Use the same partial bridge formation isobutylene isoprene rubber and same HDPE as Example 5, and the polyisobutylene (henceforth PIB-A) of viscosity average molecular weight 12000, and they are 67.5 % of the weight of partial bridge formation isobutylene isoprene rubber, 22.5 % of the weight of HDPE(s), and PIB-A. About the constituent which consists of 10 % of the weight, the result similarly estimated as Example 1 is shown in Table 3.

[0046] [Example 7] The result similarly estimated as Example 1 about the same HDPE independent as what was used for Example 1 is shown in Table 1. In addition, about the degree of hardness, only this example was measured by HsD.

[0047] [Example 8] The result of having evaluated the constituent which consists of 40 % of the weight of isobutylene isoprene rubber and 60 % of the weight of HDPE(s) is shown in Table 1 using the same ingredient and same approach as Example 1.

[0048] [Example 9] The result similarly estimated as Example 1 about the same isobutylene-isoprene-rubber independent as what was used for Example 1 is shown in Table 1.

[0049] [Example 10] The result similarly estimated as Example 3 is shown in Table 2 about the constituent which consists of 50 % of the weight of isobutylene isoprene rubber and 30 % of the

weight of talc using the same ingredient as Example 3, and 20 % of the weight of carbon black.
 [0050] [Example 11] The result similarly estimated as Example 3 is shown in Table 2 about the constituent which consists of 45 % of the weight of isobutylene isoprene rubber and 35 % of the weight of talc using the same ingredient as Example 3, and 20 % of the weight of carbon black.
 [0051] [Example 12] They are 67.5 % of the weight (henceforth PIB-B) of polyisobutylenes of viscosity average molecular weight 72000, and PIB-A as butyl system rubber. About the constituent which consists of the 22.5 % of the weight of the same HDPE(s) as 10 % of the weight and Example 1, the result similarly estimated as Example 1 is shown in Table 4.

[0052]

[Table 1]

	ブチル ゴム	HDPE	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例 1	70	30	40	1.61	4.7	○
例 2	80	20	10	1.62	6.3	○
例 7	0	100	(68)	0.541	1.0	×
例 8	40	60	90	0.985	2.2	×
例 9	100	0	0	2.52	21	○

[0053]

[Table 2]

	ブチル ゴム	HDPE	タルク	カーボン ブラック	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例 3	47.5	2.5	30	20	25	3.58	1.2	○
例 4	45	5	30	20	45	3.16	0.5	○
例10	50	0	30	20	0	3.85	3.1	○
例11	45	0	35	20	0	4.02	2.9	○

[0054]

[Table 3]

	部分架橋 ブチルゴム	HDPE	PIB -A	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例 5	80	20	—	28	4.08	7.2	○
例 6	67.5	22.5	10	42	2.87	5.8	○

[0055]

[Table 4]

	PIB -B	HDPE	PIB -A	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例 1 2	67.5	22.5	10	55	2.65	5.8	○

[0056]

[Effect of the Invention] Adding little polyethylene has also realized high degree-of-hardness-ization by adding an inorganic filler, as a high degree of hardness is formed, without spoiling the steam permeability and the tack which are the property of isobutylene isoprene rubber by adding polyethylene as shown in Table 1, and shown in Table 2. Furthermore, as shown in Table 3, partial bridge formation isobutylene isoprene rubber can be used instead of isobutylene isoprene rubber, and a polyisobutylene can also be blended.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The sectional view showing an example of the configuration of multiple glass.

[Drawing 2] The sectional view showing the configuration of multiple glass before double-stratifying.

[Drawing 3] The sectional view showing an example of the configuration of multiple glass.

[Drawing 4] The sectional view showing an example of the configuration of multiple glass.

[Description of Notations]

1a, 1b: Glass plate,

1: Multiple glass,

2: Spacer.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-110072

(43) 公開日 平成10年(1998) 4月28日

(51) IntCl ⁴	識別記号	F I
C 0 8 L 23/22	LCZ	C 0 8 L 23/22 LCZ
C 0 3 C 27/10		C 0 3 C 27/10 D
C 0 8 L 23/02	LCF	C 0 8 L 23/02 LCF
C 0 9 J 123/22	JBZ	C 0 9 J 123/22 JBZ
C 0 9 K 3/10		C 0 9 K 3/10 J

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平8-309535

(22) 出願日 平成8年(1996)11月20日

(31) 優先権主張番号 特願平7-339629

(32) 優先日 平7(1995)12月26日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(31) 優先権主張番号 特願平8-214865

(32) 優先日 平8(1996)8月14日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000000044

旭硝子株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72) 発明者 澁谷 崇

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

(72) 発明者 中川 秀樹

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

(72) 発明者 小寺 省吾

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

(74) 代理人 弁理士 泉名 謙治

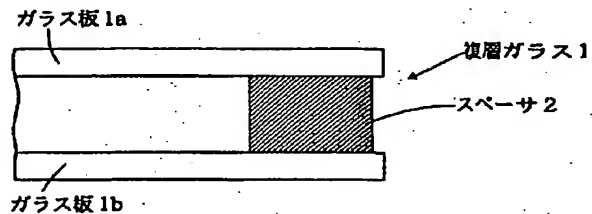
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シーリング剤組成物

(57) 【要約】

【課題】 複層ガラス1用のシール材の材料として適したシーリング剤組成物を提供する。

【解決手段】 プチル系ゴム50～98重量%と結晶性ポリオレフィン2～50重量%からなるか、または両者の合計100重量部に対してさらに200重量部以下の無機フィラーを含むシーリング剤組成物。



【特許請求の範囲】

【請求項1】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であることを特徴とするシーリング剤組成物。

【請求項2】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であることを特徴とするシーリング剤組成物。

【請求項3】結晶性ポリオレフィンがポリエチレン、ポリプロピレンまたはそれらの変性体から選ばれる1種以上の重合体からなる、請求項1または2のシーリング剤組成物。

【請求項4】複層ガラスの端部シール用の請求項1、2または3のシーリング剤組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、特に複層ガラスの端部シール用に適したシーリング剤組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】ブチル系ゴムはその粘着性、高耐候性および低透湿性という面から建材用途などのシーリング剤として用いられている。しかし、硬度が低くコールドフロー性があるため使用用途によっては、長期耐久性の点で単独では問題がある。また熔融粘度が高いために、作業性が悪いという問題もある。硬度を向上させるために各種フィラーを混合する方法もあるが、フィラーの添加のみによって高硬度化を行うと、熔融粘度が上昇し作業性を著しく損なうことに加え、場合によっては、引張り強度や引き裂き強度が低下するため望ましくない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】ブチル系ゴムが複層ガラスの端部シール材として用いられる場合、ブチル系ゴムの硬度が低いことより通常はアルミニウム製などの金属製のスペーサが用いられ、スペーサとガラスの間にブチル系ゴムがシール材として配置されている。ブチル系ゴムはガラス板とスペーサの間の面をシールし、気密性を維持する機能を有する。しかし、金属製スペーサを用いる必要上複層ガラスの製造工程が複雑化しており、製造工程をより簡略化しうるシーリング剤の開発が望まれている。

【0004】現在の複層ガラスの多くは、図3に示す複層ガラス1のように、最低2枚のガラス板1a、1bを金属スペーサ2を介して対向させ、それによって形成された中空層を、ガラス板1a、1bと乾燥剤を含む金属スペーサ2との間にブチル系ゴムからなる一次シール材3を介在させることによって、外気から遮断した後、対

向しているそれらのガラス板の周縁部の内面とスペーサ外周面とで構成された空隙（凹部）をポリスルフィド系またはシリコン系で代表される常温硬化型シーリング剤からなる二次シール材5で封着する方法で製造されている。

【0005】これまで、複層ガラスの製造工程の簡略化または自動化については、アルミニウム製スペーサを折り曲げ方式にしたり、また、常温硬化型シーリング剤についても、その塗布方法を自動化させたりするなどの生産性改良、ひいてはコストダウンなどが検討され、かつ提案されてきた。また、図4に示すようにアルミニウム製スペーサの代わりに乾燥剤を練り込んだ樹脂をスペーサ4として用いる方法も提案されてきている。

【0006】しかし、こうした常温硬化型シーリング剤を用いた複層ガラスでは、用いられるスペーサの種類を問わず、複層ガラス製造後、シーリング剤の硬化のために長時間の養生を必要とし、養生終了までは製品を出荷できない。そのために工場内に養生スペースを設け、ある一定期間製品を保管した後に出荷しなければならず、納期が長期化し、客先の要望に必ずしも応えられなかった。また、将来的に増加する需要に対応するには、これまで以上の養生スペースが必要となるため、これを回避し、十分な複層ガラスの供給量を確保するためには、上記の養生時間の短縮が必要と考えられている。

【0007】複層ガラスの低コスト化の点からは、乾燥剤を練り込んだ樹脂からなる成形物をスペーサとして用い、二次シール材を用いずに複層ガラスを製造する方法が提案されている（特公昭61-20501）。しかし、このスペーサ用樹脂はスペーサとしては硬度が不足し、実際には上記樹脂からなるスペーサ単独では複層ガラスとしての形状の維持が困難であった。

【0008】また、押出し成形可能な硬質樹脂、例えば、塩化ビニル樹脂などの熱可塑性樹脂に乾燥剤を練り込んだJIS A硬度（HsA）95の硬さを有する材料をスペーサとして用いる複層ガラスが知られている（特開平7-17748）。しかし、このHsA95の硬さを有する材料を、複層ガラスのスペーサまたはシール材として用いた場合には、複層ガラスのシール部またはガラス板にかかる応力が大きく、シール部の剥離や複層ガラス自体のガラス割れが生じるなどの難点がある。

【0009】現状では、二次シールを用いずに、複層ガラスとして要求されるスペーサのみで寿命、形状維持性、成形性などの特性をすべて満足する複層ガラスは知られていない。本発明の目的は、複層ガラスにおいてこのような二次シール材を実質的に必要としないシール材として特に有用な材料であるシーリング剤組成物を提供することにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者は、高温粘着性、耐候性、低透湿性などのブチル系ゴムの特性を維持

しながら、できるだけ簡便な方法でブチル系ゴムの高硬度化を実現する方法について鋭意検討した結果、結晶性ポリオレフィンを含み下記シーリング剤組成物である。

【0011】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であることを特徴とするシーリング剤組成物。

【0012】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であることを特徴とするシーリング剤組成物。

【0013】

【発明の実施の形態】本発明におけるブチル系ゴムとは、イソブチレンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物をいう。単独重合体としては、比較的高分子量の単独重合体や比較的低分子量の単独重合体がある。前者の分子量は通常3万以上、代表的なもの（市販品など）は5万～15万である。後者の分子量は通常3万未満、代表的なもの（市販品など）は1万～1.5万である。なお、ここにおける分子量とは粘度平均分子量（スタウディングー分子量）をいう。本発明においてブチル系ゴムとしてイソブチレンの単独重合体を用いる場合は比較的高分子量の単独重合体を用いられる。比較的低分子量の単独重合体は他のブチル系ゴムと併用して使用でき、通常、粘着付与や可塑化（低粘度化）の目的で添加剤として使用される。なお、実施例におけるポリイソブチレンはこれらのイソブチレン単独重合体をいう。

【0014】共重合体はイソブチレンと比較的少量の共重合性モノマーの1種以上を共重合して得られる重合体であり、共重合性モノマーとしては、例えば、イソブレン、1-ブテン、ジビニルベンゼン、p-メチルスチレンなどがある。共重合体としては特にイソブレンと共重合して得られる共重合体（通常ブチルゴムと呼ばれているもの）が好ましい。変性物としてはブチルゴムの塩素化合物や臭素化合物などのハロゲン化ブチルゴムやブチルゴムなどを部分加硫して得られる部分加硫ブチルゴムなどがある。本発明において特に好ましいブチル系ゴムは、比較的高分子量のイソブチレン単独重合体、通常ブチルゴムと呼ばれているイソブチレンとイソブレンとの共重合体、および部分加硫ブチルゴムである。

【0015】本発明における結晶性ポリオレフィンは、エチレンやプロピレンなどのオレフィンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物であ

て、結晶性を有しているものをいう。重合体の構造はシンジオタクチック構造やアイソタクチック構造であることが好ましいが、他の構造を含んでいてもよい。オレフィンとしては特にエチレンとプロピレンが好ましい。

【0016】共重合体としては2種以上のオレフィンの共重合体やオレフィンと他の単量体との共重合体があり、エチレンやプロピレンと結晶性を阻害しない他の単量体との共重合体が適当である。また共重合体としては、交互共重合体やランダム共重合体よりもブロック共重合体が適当である。変性物としては酸無水物基、カルボキシ基、エポキシ基などの官能基を導入した結晶性ポリオレフィンがある。

【0017】本発明において特に好ましい結晶性ポリオレフィンは、実質的な単独重合体であるポリエチレンとポリプロピレンである。例えば、ポリエチレンとして低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレンなどを使用できる。結晶性ポリオレフィンの結晶化度は30%以上が好ましく、特に50%以上が好ましい。例えば、通常の結晶性ポリオレフィンにおける代表的な結晶化度の値は、低密度ポリエチレンで50～60%、高密度ポリエチレンで75～90%、ポリプロピレンで55～65%である。分子量は特に限定されないが、数平均分子量でポリエチレンでは約20万～80万、ポリプロピレンでは約10万～40万のものが適当である。

【0018】このようにポリエチレンやポリプロピレンは高い結晶性を有するためブチル系ゴムより低透湿性であり、なかでもより低い溶解粘度を示すものは、ブチル系ゴム単独の場合に比較して、組成物の溶解粘度が低下し成形加工性が向上する。したがってまた、種々の無機フィラーを配合することが可能となってより高硬度のシーリング剤を実現させ、また経済性の観点からも特にこれらが好ましい。

【0019】本発明のシーリング剤組成物においてブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～50重量%であり、好ましくは5～40重量%である。結晶性ポリオレフィンの割合が2重量%未満ではブチル系ゴムの高硬度化が難しく、50重量%超では結晶性ポリオレフィンの性質が主体となりブチル系ゴムの特性が発現し難くなる。

【0020】無機フィラーが配合される場合、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は少なくとも2重量%である。例えば、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量部に対して約50重量部以上の無機フィラーが配合される場合には、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～20重量%で充分目的の効果が発揮される。

【0021】ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンを含み本発明のシーリング剤組成物に実質的に有効量の無機

フィラーを配合できる。実質的に有効量とは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量部に対して1重量部以上をいう。あまりに多量の無機フィラーを配合することは組成物の熔融粘度が上昇し、また、引張り強度や引き裂き強度が低下するため、配合量の上限は200重量部であり、好ましくは150重量部である。無機フィラー配合の場合の配合量の好ましい下限は10重量部である。

【0022】無機フィラーとしては、炭酸カルシウム、タルク、マイカ、カーボンブラックなど、通常無機フィラーとして用いられているものを、単独または2種以上併用して使用できる。

【0023】本発明のシーリング剤組成物が少なくとも最終的な用途に使用される前において、それに含まれるブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンが高温下で混合されていることがきわめて有効である。この混合における高温とは結晶性ポリオレフィンの結晶熔点以上の温度をいう。この混合温度はブチル系ゴムの分解点以下である必要があり、通常のブチル系ゴムの分解点である約300℃以下が好ましい。特に生産性などの面から200℃以下が好ましい。したがってまた結晶性ポリオレフィンの結晶熔点も200℃以下が好ましい。

【0024】シーリング剤はその使用温度範囲においてはできるだけ硬度変化の少ないことがより好ましい。こうした要件を満足するためには結晶性ポリオレフィンとしては、通常の使用上限温度以上に結晶熔点を有するものが好ましい。シーリング剤の通常の使用上限温度は約80℃である。

【0025】本発明においては結晶性ポリオレフィンが結晶相による凝集力に拘束されているために、ガラス転移温度を超えた温度領域でも非晶性樹脂に見られる急激な硬度低下や流動状態は結晶熔点以下では起こらない。逆に、結晶熔点を境に熔融粘度の著しい低下が見られ、ブチル系ゴムとの混練性を良好にならしめる効果が期待できる。

【0026】本発明のシーリング剤組成物には一般的にシーリング剤に配合されうる添加剤を配合できる。このような添加剤としては、例えば、乾燥剤、滑剤、顔料、帯電防止剤、粘着付与剤、可塑剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、シランカップリング剤などの加水分解性シリル基含有化合物、発泡剤、前記無機フィラー以外の充填材、などがある。特にゼオライト、シリカゲル、アルミナなどの乾燥剤、粘着付与剤、可塑剤、シランカップリング剤、各種安定剤の配合が好ましい。

【0027】添加剤のうちでも、特にゼオライトなどの乾燥剤をシーリング剤組成物中に5～30重量%配合することが好ましい。また、粘着付与効果と可塑化効果を与える添加剤として前記した比較的低分子量のポリイソブチレンを、ブチル系ゴム100重量部に対し200重量部以下、特に5～150重量部添加することも好ま

しい。

【0028】本発明のシーリング剤組成物は、前記のように少なくともブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンを結晶性ポリオレフィンの結晶熔点以上ブチル系ゴムの分解点以下の温度で混合して製造されることが好ましい。この混合温度は100～280℃、特に120～250℃、が好ましい。他の配合物や添加剤は同時に混合してもよく、その混合前または後に混合してもよい。本発明の組成物は実質的に熱可塑性の組成物であり、通常の熔融混合押出し機やニーダーなどの混合機で混合できる。

【0029】上記のように本発明の組成物は実質的に熱可塑性の組成物であることより、上記混合操作と連続して成形を行うこともできる。また、組成物を製造してベレット状などの成形材料とし、その後成形を行うこともできる。成形法としては押出し成形法や射出成形法などの熔融成形法を使用できる。また成形操作と連続して成形物を、2枚以上のガラス板が対向配置された複層ガラス材料の端部に配置して複層ガラスを製造できる。この場合成形機から出た高温の組成物を用いることにより、ガラス板との高い接着性が得られる。また、アプリケーションなどの装置を用いて組成物の温度低下を抑制しながら、複層ガラス材料に適用することもできる。この装置としては加熱可能なものが好ましい。

【0030】最終的なシーリング用途に使用された本発明のシーリング剤組成物の物性としては、JIS K7149による水蒸気透過係数が 4.0×10^{-7} [cm³ · cm / (cm² · sec · cmHg)] 以下、特に 7.0×10^{-8} [cm³ · cm / (cm² · sec · cmHg)] 以下であることが好ましい。また、25℃におけるJIS A硬度(HsA)は5以上、特に20以上であることが複層ガラスの形状維持性の面より好ましい。またあまり硬すぎるものは複層ガラスのシール部やガラス板にかかる応力が大きくなるおそれがあるので、硬度の上限は90程度が好ましい。

【0031】本発明のシーリング剤組成物は特に複層ガラスの端部をシールするためのものとして特に優れる。この複層ガラスとしては、前記のように金属製などの硬いスペーサを用いずシール材の硬さによってガラス板間を保持する構造の複層ガラスであることが好ましい。本発明のシーリング剤組成物は結晶性ポリオレフィンや無機フィラーの配合量を変えて適当な硬さのシール材となしうることより、このスペーサを用いない構造の複層ガラス用のシーリング剤組成物として適する。この用途に使用される本発明のシーリング剤組成物の25℃におけるJIS A硬度(HsA)は40～90であることが特に好ましい。

【0032】図1は、上記構造の複層ガラスの1例を示す構成断面図であり、複層ガラス1は、2枚のガラス板1aおよび1bを、本発明のシーリング剤組成物からなるシール材2のみによって所定の間隔に保持されてい

る。なお、上記の「シール材2のみによる」の意味は、他に二次シール材や金属製のスペーサなどを不要とすることを指すものであり、必要に応じて適用されるブライマー処理などを除外するものではない。

【0033】上記の複層ガラスは、必要に応じてスペーサが当接するガラス面に溶剤に溶解した接着剤を塗布し風乾しておき、図2に示すように2枚のガラス板1a、1bを所定間隔（例えば6mm、12mm）に保持し、次に、押出し成形機を用い、前記本発明のシーリング剤組成物を、例えば150～200℃の温度で溶融させ、適当な先端形状をもつダイから押出しながら、2枚のガラス板間に介在させて冷却することによって形成される。この複層化の方法は一例であって、複層ガラスの製造方法自体は上記方法に限定されず、例えば、前記シーリング剤組成物からあらかじめ所望形状のシール材を成形しておき、これを例えば2枚のガラス板で熱圧着させて形成してもよい。

【0034】複層ガラスの構成に使用するガラス板は、通常、建材、車両などに広く使用されている窓、ドアなどのガラス板、強化ガラス、合わせガラス、金属網入りガラス、熱線吸収ガラス、さらには、熱線反射ガラス、低反射率ガラスなどのように、内面に金属や他の無機物を薄くコーティングしたガラス板、有機ガラスと呼ばれるアクリル樹脂板、ポリカーボネート板などであり、特に限定されない。

【0035】また、複層ガラスは2枚のガラス板から構成されるものでもよく、3枚またはそれ以上のガラス板から構成されるものでもよい。

【0036】本発明のシーリング剤組成物は上記図1に示す構造の複層ガラス用のシーリング剤に限定されない。例えば、シール材よりも硬い材料（例えば金属製や硬質合成樹脂製）のスペーサとシール材を組み合わせて端部をシールした構造の複層ガラスにおいて、シール材の材料として本発明のシーリング剤組成物を使用できる。また、複層ガラス以外の建材用途などのシーリング剤として本発明のシーリング剤組成物を使用できる。

【0037】

【実施例】次に実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されない。下記例1～6および例12は実施例であり、例7～11は比較例である。

【0038】【例1】ブチル系ゴムとしてムーニー粘度47 ML (1+8) 100℃であるブチルゴムを用い、結晶性ポリオレフィンとしてメルトインデックス20、結晶融点130℃、結晶化度約80%である高密度ポリエチレン (HDPE) を用いた。

【0039】ブチルゴムとHDPEをラボブラストミルを用いて160℃、20rpmで30分間溶融混合を行った。硬度 (HsA) についてはJIS K6301に準じて測定した。溶融粘度は160℃でキャピログラフ

により測定を行い、せん断速度91 sec⁻¹の値を示した。水蒸気透過係数については、60℃で薄膜の片側に20mmHg程度の水蒸気圧をかけ、もう一方を真空にし、薄膜を透過してくる水蒸気の速度から求めた。160℃における粘着性（高温タック）については、必要充分なタックが発現している場合を○とし、タックが不充分な場合を×とし、その中間の場合を△とした。

【0040】上記の材料と方法を用い、ブチルゴム70重量%とHDPE30重量%からなる組成物について評価した。結果を表1に示す。なお、表1、表2および表3において、材料の組成の数値は重量%を表し、溶融粘度は10⁻⁴ ポイズを単位とし、水蒸気透過係数は10⁻⁹ cm³・cm/(cm²・sec・cmHg)を単位とする。

【0041】【例2】例1と同じ材料と方法を用い、ブチルゴム80重量%とHDPE20重量%からなる組成物について例1と同様に評価した。結果を表1に示す。

【0042】【例3】例1と同じブチルゴムおよびHDPEを用い、さらに無機フィラーとしてタルクとHAF型カーボンブラックを用いて、例1と同じ方法で試験を行った。ブチルゴム47.5重量%、HDPE2.5重量%、タルク30重量%、カーボンブラック20重量%からなる組成物についての評価結果を表2に示す。

【0043】【例4】例3と同じ材料を用いたブチルゴム45重量%、HDPE5重量%、タルク30重量%、カーボンブラック20重量%からなる組成物について、例3と同じように評価した結果を表2に示す。

【0044】【例5】ブチル系ゴムとしてムーニー粘度45 ML (1+3) 121℃である部分架橋ブチルゴムを用い、結晶性ポリオレフィンとして例1と同じHDPEを用い、部分架橋ブチルゴム80重量%とHDPE20重量%からなる組成物について、例1と同様に評価した結果を表3に示す。

【0045】【例6】例5と同じ部分架橋ブチルゴムとHDPE、および粘度平均分子量12000のポリイソブチレン（以下、PIB-Aという）を用い、部分架橋ブチルゴム67.5重量%、HDPE22.5重量%およびPIB-A 10重量%からなる組成物について、例1と同様に評価した結果を表3に示す。

【0046】【例7】例1に用いたものと同じHDPE単独について例1と同様に評価した結果を表1に示す。なお硬度についてはこの例のみHsDで測定した。

【0047】【例8】例1と同じ材料と方法を用い、ブチルゴム40重量%とHDPE60重量%からなる組成物を評価した結果を表1に示す。

【0048】【例9】例1に用いたものと同じブチルゴム単独について例1と同様に評価した結果を表1に示す。

【0049】【例10】例3と同じ材料を用いたブチルゴム50重量%、タルク30重量%、カーボンブラック

20重量%からなる組成物について、例3と同様に評価した結果を表2に示す。

【0050】【例11】例3と同じ材料を用いたブチルゴム45重量%、タルク35重量%、カーボンブラック20重量%からなる組成物について、例3と同様に評価した結果を表2に示す。

【0051】【例12】ブチル系ゴムとして粘度平均分*

*分子量72000のポリイソブチレン（以下、PIB-Bという）67.5重量%、PIB-A 10重量%および例1と同じHDPE22.5重量%からなる組成物について、例1と同様に評価した結果を表4に示す。

【0052】

【表1】

	ブチル ゴム	HDPE	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例1	70	30	40	1.61	4.7	○
例2	80	20	10	1.62	6.3	○
例7	0	100	(68)	0.541	1.0	×
例8	40	60	90	0.985	2.2	×
例9	100	0	0	2.52	21	○

【0053】

※ ※【表2】

	ブチル ゴム	HDPE	タルク	カーボン ブラック	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例3	47.5	2.5	30	20	25	3.58	1.2	○
例4	45	5	30	20	45	3.16	0.5	○
例10	50	0	30	20	0	3.85	3.1	○
例11	45	0	35	20	0	4.02	2.9	○

【0054】

★ ★【表3】

	部分架橋 ブチルゴム	HDPE	PIB -A	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例5	80	20	—	28	4.08	7.2	○
例6	67.5	22.5	10	42	2.87	5.8	○

【0055】

☆ ☆【表4】

	PIB -B	HDPE	PIB -A	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
例12	67.5	22.5	10	55	2.65	5.8	○

【0056】

【発明の効果】表1に示すようにポリエチレンを添加することによって、ブチルゴムの特性である水蒸気透過性、タックを損なうことなく高硬度化し、また、表2に示すように無機フィラーを加えることにより、少量ポリエチレンを添加するだけでも高硬度化が実現できた。さらに、表3に示すようにブチルゴムの代わりに部分架橋ブチルゴムを使用でき、またポリイソブチレンを配合す

ることもできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】複層ガラスの構成の一例を示す断面図。

【図2】複層化する前の複層ガラスの構成を示す断面図。

【図3】複層ガラスの構成の一例を示す断面図。

【図4】複層ガラスの構成の一例を示す断面図。

【符号の説明】

(7)

特開平10-110072

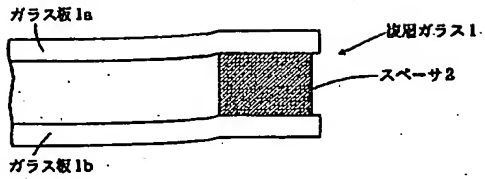
12

11

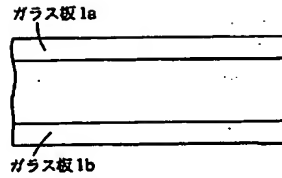
1a、1b: ガラス板、
1: 複層ガラス、

* 2: スペース。
*

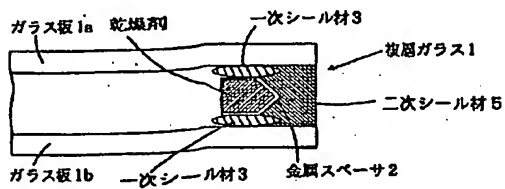
【図1】



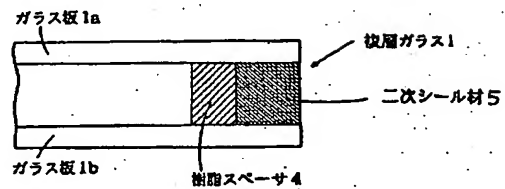
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 松山 祥孝
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地
旭硝子株式会社中央研究所内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.